



45384

SPW
PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of: :
Alfred KORBER : Patent Art Unit: 1615
Serial No.: 10/608,416 :
Filed: June 30, 2003 :
For: COMPACTED LACTIC ACID MENTHYL :
ESTER :

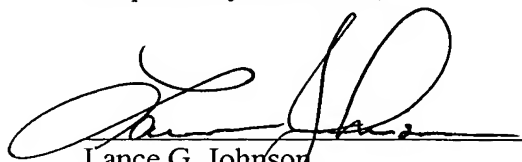
CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. § 119

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119, there is filed herewith a certified copy of German Application No. 102 29 472.0, filed July 1, 2002, in accordance with the International Convention for the Protection of Industrial Property, 53 Stat. 1748, under which Applicant hereby claims priority.

Respectfully submitted,


Lance G. Johnson
Reg. No. 32,531

Roylance, Abrams, Berdo & Goodman, L.L.P.
1300 19th Street, N.W., Suite 600
Washington, D.C. 20036
(202) 659-9076

Dated: 25 Aug 2004

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 102 29 472.0
Anmeldetag: 01. Juli 2002
Anmelder/Inhaber: Haarmann & Reimer GmbH,
Holzminden/DE
Bezeichnung: Kompaktierter Milchsäurementhylester
IPC: C 07 C 69/68

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 10. Juli 2003
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

**CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT**

Kompaktierter Milchsäurementhylester

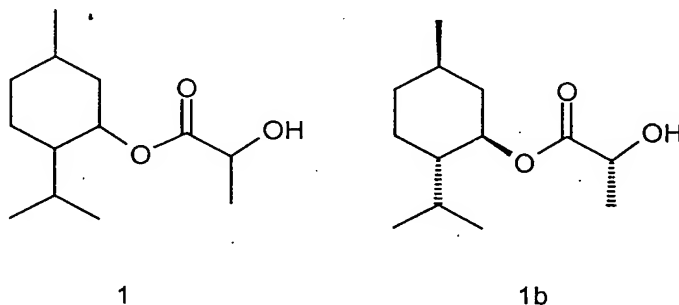
Die Erfindung betrifft Milchsäurementhylester-Presslinge, ein Verfahren zur Herstellung von Milchsäurementhylester-Presslingen und deren Verwendung.

5

10

Milchsäurementhylester (MME, Menthyllactat) der Formel (1) ist eine Verbindung mit physiologischer Kühlwirkung auf Haut- und Schleimhäute des Körpers, die in einer Vielzahl von Produkten eingesetzt werden kann, bei denen eine lang anhaltende physiologische Kühlwirkung erwünscht wird wie z. B. in Genussmitteln wie Kaugummis, Kautabak, Zigaretten, Eis, Konfekt, Getränken sowie in Körperpflegemitteln und pharmazeutischen oder kosmetischen Präparaten wie Zahnreinigungsmitteln, Mundwässern, Parfüms, Pudern, Lotionen, Salben, Ölen, Cremes, Lichtschutzzubereitungen, Rasiercremes und -wässer, Duschgels oder Shampoos. Vorteilhaft eingesetzt wird in diesen Produkten l-Milchsäure-l-menthylester (1b).

15



20

Der MME ist als erstarrtes Destillat oder auch als Kristallisat im Handel erhältlich. Beim Lagern über einen längeren Zeitraum, meist im Laufe mehrerer Wochen, entwickelt der MME einen säuerlichen, stechenden Geruch, wodurch dieser für die meisten Verwendungszwecke unbrauchbar wird. Zudem muss das feste Produkt vor der Dosierung und Einarbeitung in Produkte oder Artikel oft mehrfach aufgeschmolzen werden. Diese thermische Belastung mindert die Qualität des MME zusätzlich. Dieser Qualitätsverlust geht oftmals mit einem Ansteigen der Säurezahl einher.

25

MME wird üblicherweise durch säurekatalysierte Veresterung handelsüblicher Milchsäure mit handelsüblichem Menthol hergestellt, wie beispielsweise in EP-B 794 169 beschrieben. Zur weiteren Reinigung kann das Destillat einer Kristallisation unterworfen werden, das hierdurch erhältliche (1) weist meist eine Reinheit von größer 99,5 % (GC) auf.

Zur Vermeidung der säuerlichen, stechenden Note, kann beim Kristallisationsprozess ein Stabilisator in Form von Alkali- und/oder Erdalkalicarbonaten und/oder -hydrogencarbonaten zugesetzt werden, wie in EP-B 794169 beschrieben. Zur Erreichung der gewünschten Stabilisierung wird in diesem Falle in Gegenwart der genannten anorganischen Salze kristallisiert. Die durch dieses Verfahren erhältliche Mischung aus MME und anorganischem Salz ist bei manchen Anwendungen jedoch nachteilig, insbesondere wenn das anorganische Salz Inkompatibilitäten, Trübungen oder Niederschläge in der Anwendung bewirkt.

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung bestand nun darin eine Stabilisierung des Milchsäurementhylesters ohne den Zusatz anorganischer Salze zu erreichen.

Es wurde nun gefunden, dass durch Pressung (Kompaktierung) des Milchsäurementhylesters gebildete Formkörper (Presslinge, Kompaktate) über einen langen Lagerzeitraum (mindestens 6 Monate) stabil sind und sich sensorisch nicht verändern. Die Säurezahl dieses gepressten Milchsäurementhylesters ändert sich während dieser Lagerzeit nicht.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind daher Presslinge mit einem Gehalt an Milchsäurementhylester von mindestens 80 Gew.-%.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung von Milchsäurementhylester-Presslingen, dadurch gekennzeichnet, dass der Gehalt an Milchsäurementhylester im fertigen Pressling bei mindestens 80 Gew.-% liegt.

Bevorzugt ist ein Gehalt an MME im Pressling von mindestens 90 Gew.-%, besonders bevorzugt von mindestens 95 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt von mindestens 98 Gew.-%. In einer bevorzugten Ausführungsform liegt der Gehalt an MME im Pressling oberhalb von 99 Gew.-%. Die unterschiedlichen Reinheitsgrade können beispielsweise durch Destillation oder Kristallisation erhalten werden.

Erfindungsgemäß können alle Isomere des Milchsäurementhylesters in die Pressung eingesetzt werden, d.h. es können grundsätzlich die Milchsäureester von Menthol, Neomenthol, Isomenthol und/oder Neoisomenthol verwendet werden. Diese MME können als einzelne Isomere oder auch als beliebige Mischungen in die Pressung eingesetzt werden. Hierbei kann es sich um Menthylester der d-Milchsäure, der l-Milchsäure oder einer beliebigen Mischung davon, wie z.B. der racemischen dl-Milchsäure, handeln. Vorteilhafte Milchsäureester sind solche des Menthols, bevorzugt des l-Menthols. Ein ganz besonders bevorzugter MME ist l-Milchsäure-l-menthylester (1b).

Der MME wird bevorzugt in fester Form in die Pressung eingebracht, beispielsweise in Form von Kristallen, Schuppen, Granulaten, Pulvern oder Mischungen dieser Formen. Erfindungsgemäß bevorzugt sind Schuppen von MME. Die Schuppung des MME kann beispielsweise analog zu dem in US-A 3 064 311 beschriebenen Verfahren erfolgen, wobei ein flüssiger MME über eine gekühlte Schuppenwalze zu Schuppen geformt wird.

Erfindungsgemäß enthalten die MME-Presslinge keine Alkali- und/oder Erdalkalicarbonate und/oder -hydrogencarbonate als Stabilisatoren. Auch ein Zusatz anderer stabilisierend wirkender Stoffe ist nicht notwendig.

Die Presslinge können als solche in den Anwendungen eingesetzt werden, wodurch eine thermische Belastung durch Aufschmelzen vermieden wird. Des weiteren ist eine bequeme und sichere Handhabung der Presslinge bei der Einarbeitung in For-

mulierungen, Zubereitungen, Artikel und Produkte gegeben. Die Presslinge weisen eine gute Schütt- und Rieselfähigkeit auf, was für die Dosierung insbesondere im technischen und industriellen Bereich von Vorteil ist.

- 5 Die Form der Presslinge kann verschieden sein. Am gebräuchlichsten sind Kugeln, Würfel, Quader, Kissen, Zylinder, Tabletten, Pellets oder Briketts, eine bevorzugte Form ist das Pellet.

10 Die durch Kompaktierung gebildeten erfindungsgemäßen Presslinge bleiben bei der Lagerung über mehrere Monate formstabil. Ein Verklumpen, Verbacken oder Zusammenwachsen der Presslinge findet nicht statt. Eine gute Schütt- und Rieselfähigkeit sowie Dosierbarkeit der erfindungsgemäßen Presslinge ist daher auch nach längeren Lagerzeiten gegeben.

- 15 Die Abmessungen des Presslings können stark differieren. Im Falle einer Kugel liegt der Durchmesser meist im Bereich 2 - 20 mm, bevorzugt bei 4 - 10 mm. Im Falle des Pellets liegen Länge und Breite meist bei 3 - 20 mm, bevorzugt bei 5 - 15 mm, die Höhe meist im Bereich von 2 - 15 mm, bevorzugt bei 5 - 12 mm.

- 20 Die Presskraft des Kompaktors liegt üblicherweise im Bereich von 10 - 100 kN (Kilo-Newton), bevorzugt bei 30 - 80 kN.

Bei der Kompaktierung des Milchsäurementhylesters sind auf den Durchmesser bezogen bevorzugt Linienpresskräfte von 1,5 - 4 Newton / mm·mm anzuwenden.

- 25 Bewährte Brikettierungsverfahren sind beispielsweise in Chemie - Anlagen + Verfahren 1985, Heft 4, Seiten 51,54 und 59 beschrieben.

Folgendes Beispiel erläutert die Erfindung.

Beispiel

Über eine Schnecke mit anschließender Rüttelrinne werden einem Kompaktor der Firma BEPEX GmbH, bestehend aus zwei Kompaktorenwalzen (Ausmaße der Kompaktorwalzen: Breite 100 mm, Durchmesser 200 mm), pro Stunde 150 - 200 kg geschuppten Milchsäurementhylesters (GC-Gehalt: 97,3 % l-Milchsäure-l-menthylester, 1,4 % d-Milchsäure-l-menthylester) zugeführt. Der Kompaktor erzeugt bei Raumtemperatur mit einer Presskraft von 50 kN Presslinge in Form von Pellets, Kissen oder Zylindern, mit den Ausmaßen Länge = Breite = 10 mm und Höhe = 6 mm.

Patentansprüche

1. Milchsäurementhylester-Presslinge, dadurch gekennzeichnet, dass der Gehalt an Milchsäurementhylester im Pressling bei mindestens 80 Gew.-% liegt.
2. Presslinge nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Gehalt an Milchsäurementhylester im Pressling bei mindestens 90 Gew.-% liegt.
3. Presslinge nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Gehalt an Milchsäurementhylester im Pressling bei mindestens 95 Gew.-% liegt.
4. Presslinge nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass es sich um Presslinge aus l-Milchsäure-l-menthylester handelt.
5. Presslinge nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass geschuppter Milchsäurementhylester in die Pressung eingesetzt wird.
6. Presslinge nach mindestens einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass diese in Form von Kugeln, Würfeln, Quadern, Kissen, Zylindern, Tabletten, Pellets oder Briketts vorliegen.
7. Verfahren zur Herstellung von Milchsäurementhylester-Presslingen, dadurch gekennzeichnet, dass der Gehalt an Milchsäurementhylester im fertigen Pressling bei mindestens 80 Gew.-% liegt.
8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass der Gehalt an Milchsäurementhylester im fertigen Pressling bei mindestens 90 Gew.-% liegt.

9. Verfahren nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, dass in die Pressung geschuppter Milchsäurementhylester eingesetzt wird.
- 5 10. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 7 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass l-Milchsäure-l-menthylester eingesetzt wird.
11. Verfahren nach mindestens einem der Ansprüche 7 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Pressung mit einer Presskraft im Bereich von 10 - 100 kN durchgeführt wird.
- 10 12. Verwendung von Presslingen gemäß mindestens einem der Ansprüche 1 bis 6 zur Einarbeitung in Produkte.

Kompaktierter Milchsäurementhylester

Z u s a m m e n f a s s u n g

Die Erfindung betrifft Milchsäurementhylester-Presslinge, ein Verfahren zur Herstellung von Milchsäurementhylester-Presslingen und deren Verwendung.